

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/019293

International filing date: 16 December 2004 (16.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2003-427083  
Filing date: 24 December 2003 (24.12.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 10 February 2005 (10.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

16.12.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2003年12月24日

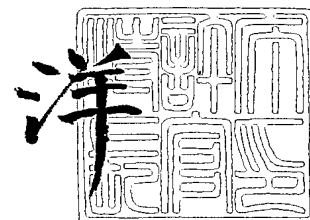
出願番号  
Application Number: 特願2003-427083  
[ST. 10/C]: [JP 2003-427083]

出願人  
Applicant(s): トヨタ自動車株式会社

2005年 1月28日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 PA14G316  
【提出日】 平成15年12月24日  
【あて先】 特許庁長官 今井 康夫 殿  
【国際特許分類】 H01M 8/02  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
    【氏名】 伊澤 康浩  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
    【氏名】 伊藤 直樹  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000003207  
    【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 110000028  
    【氏名又は名称】 特許業務法人 明成国際特許事務所  
    【代表者】 下出 隆史  
    【電話番号】 052-218-5061  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 133917  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0105457

**【書類名】特許請求の範囲****【請求項 1】**

プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を備える燃料電池であって、

前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境により定まる前記燃料電池内の不均一な温度分布を均一化する温度分布均一化部を備える

燃料電池。

**【請求項 2】**

請求項 1 記載の燃料電池であって、

前記燃料電池の運転条件は、該燃料電池に供給される流体の温度および流れ方向である燃料電池。

**【請求項 3】**

請求項 1 または 2 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して、温度が他の領域よりも上昇する昇温領域における発熱を抑える

燃料電池。

**【請求項 4】**

請求項 3 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、前記昇温領域における電気化学反応を抑制する燃料電池。

**【請求項 5】**

請求項 4 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、電気化学反応を促進する触媒を含有すると共に、前記燃料電池の電極上に配設されて、前記昇温領域に対応する部分における前記触媒の含有量が、前記他の領域に対応する部分における前記触媒の含有量より少なく形成される触媒層である燃料電池。

**【請求項 6】**

請求項 4 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、電気化学反応が進行する金属薄膜から成ると共に、前記昇温領域に対応する部分における表面積がより小さく形成される電極である

燃料電池。

**【請求項 7】**

請求項 6 記載の燃料電池であって、

前記電極は、前記水素透過性金属層である

燃料電池。

**【請求項 8】**

請求項 4 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、前記昇温領域に対応する部分がより厚く形成されている前記水素透過性金属層である

燃料電池。

**【請求項 9】**

請求項 1 ないし 8 いずれか記載の燃料電池であって、

アノードに供給される燃料ガスとして、炭化水素系燃料を改質して得られる改質ガスを用いる

燃料電池。

**【請求項 10】**

請求項 3 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の内部においてアノードに連通して設けられ、炭化水素系燃料から水素を生成する改質反応を促進する改質触媒を備える改質触媒部であり、

該改質触媒部は、前記炭化水素系燃料および水蒸気が供給されると共に、前記昇温領域に対応する部分における前記改質触媒の含有量が、前記他の領域に対応する部分における前記改質触媒の含有量より多く形成される

燃料電池。

【請求項 1 1】

請求項 1 または 2 記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の内部においてアノードに連通して設けられ、一酸化炭素と水蒸気とから水素と二酸化炭素とを生成するシフト反応を促進するシフト触媒を備えるシフト触媒部であり、

該シフト触媒部は、水素と一酸化炭素と水蒸気とを含有する改質ガスを供給されると共に、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して温度が他の領域よりも低下する領域に対応する部分における前記シフト触媒の含有量が、前記他の領域に対応する部分における前記シフト触媒の含有量より多く形成される

燃料電池。

【請求項 1 2】

請求項 1 ないし 1 1 いずれか記載の燃料電池であって、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して、前記燃料電池を構成する単セルの同一面内において定まる不均一な温度分布に基づいて設けられる

燃料電池。

【請求項 1 3】

請求項 1 ないし 1 1 いずれか記載の燃料電池であって、

該燃料電池は、単セルを積層して構成され、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して、前記燃料電池全体において定まる不均一な温度分布に基づいて設けられる

燃料電池。

【請求項 1 4】

プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を有する燃料電池を備える燃料電池装置であって、

電気化学反応に供するために前記燃料電池に供給される反応ガスの温度および流れ方向に起因する前記燃料電池内の温度分布の不均一化を抑制する温度分布均一化部を備え、

該温度分布均一化部は、

前記燃料電池に前記反応ガスを給排可能な第 1 および第 2 の流路と、

前記第 1 の流路に設けられ、該第 1 の流路に接続する流路から前記反応ガスが供給されて該反応ガスが前記燃料電池内に導かれるガス導入状態と、前記第 1 の流路を外部と連通させて前記燃料電池内を通過した前記反応ガスを外部に導くガス排出状態とを切り替える第 1 の切り替え部と、

前記第 2 の流路に設けられ、該第 2 の流路に接続する流路から前記反応ガスが供給されることによる前記ガス導入状態と、前記第 2 の流路を外部と連通させることによる前記ガス排出状態とを切り替える第 2 の切り替え部と、を備え、

前記第 1 の切り替え部および前記第 2 の切り替え部を制御することによって、前記燃料電池内を通過する前記反応ガスの流れの向きを変更する

燃料電池装置。

【請求項 1 5】

プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を有する燃料電池を備える燃料電池装置であって、

電気化学反応に供するために前記燃料電池に供給される反応ガスの温度と流れ方向、および／または前記燃料電池が配設される環境により定まる前記燃料電池内の温度分布の不均一化を抑制する温度分布均一化部を備え、

該温度分布均一化部は、

前記反応ガスが前記燃料電池内を通過した後に前記燃料電池から排出されたガスである反応排ガスの少なくとも一部を、前記反応ガスに混合する反応ガス循環部と、

前記反応排ガスを、前記反応ガスに混合するのに先立って降温させる反応ガス降温部と、を備える

燃料電池装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池

【技術分野】

【0001】

この発明は、燃料電池に関し、詳しくは、電解質層と共に水素透過性金属層を備える燃料電池に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、様々な種類の燃料電池が提案されている。例えば、特許文献1には、プロトン伝導性を有する電解質層のアノード側に、水素透過性を有するパラジウム系金属膜を配設した燃料電池が開示されている。この特許文献1では、電解質膜のアノード側に水素透過性を有する金属膜を設けることによって、十分に精製されていない改質ガスを、燃料ガスとして直接アノードに供給可能としている。

【0003】

【特許文献1】特開平5-299105号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

しかしながら、水素透過性金属層を構成する金属材料は、一般的に大きな熱膨張係数を示し、温度によって膨張率が大きく異なる。そのため、水素透過性金属層における温度分布状態が不均一になると、部位によって水素透過性金属層の伸び率が異なることに起因して水素透過性金属層の劣化が引き起こされ、水素透過性金属層の耐久性が不十分となる可能性があった。また、燃料電池内部の温度分布状態がばらつくと、電池性能が低下する可能性があり、十分な電池性能を維持するためには、燃料電池内部の温度分布状態を均一化して、運転温度を全体として所定の温度範囲に保つことが望ましい。

【0005】

本発明は、上述した従来の課題を解決するためになされたものであり、水素透過性金属層を備える燃料電池内の不均一な温度分布に起因する燃料電池の耐久性低下などの性能低下を防止することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

上記目的を達成するために、本発明は、プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を備える燃料電池であって、

前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境により定まる前記燃料電池内の不均一な温度分布を均一化する温度分布均一化部を備えることを要旨とする。

【0007】

以上のように構成された本発明の燃料電池によれば、燃料電池の運転条件および／または燃料電池が配置される環境により定まる燃料電池内の不均一な温度分布が均一化されるため、燃料電池内の不均一な温度分布に起因して水素透過性金属層の耐久性が低下したり、電池性能が低下するのを防止することができる。

【0008】

本発明の燃料電池において、前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して、温度が他の領域よりも上昇する昇温領域における発熱を抑えることとしても良い。

【0009】

このような構成とすれば、温度が他の領域よりも上昇する昇温領域の発熱を抑えることで、燃料電池内の不均一な温度分布を効果的に均一化することができる。

【0010】

このような燃料電池において、前記温度分布均一化部は、前記昇温領域における電気化

学反応を抑制することとしても良い。

【0011】

燃料電池内部では、電気化学反応に伴い熱が生じるため、電気化学反応を抑制することで発熱を抑え、不均一な温度分布を均一化できる。

【0012】

本発明の燃料電池において、

前記温度分布均一化部は、電気化学反応を促進する触媒を含有すると共に、前記燃料電池の電極上に配設されて、前記昇温領域に対応する部分における前記触媒の含有量がより少なく形成される触媒層であることとしても良い。

【0013】

このような構成とすれば、触媒層における触媒の含有量をより少なくした領域における電気化学反応を抑制することができ、燃料電池内での不均一な温度分布を均一化できる。

【0014】

あるいは、本発明の燃料電池において、

前記温度分布均一化部は、電気化学反応が進行する金属薄膜から成ると共に、前記昇温領域に対応する部分における表面積がより小さく形成される電極であることとしても良い。

【0015】

このような構成とすれば、電極の表面積をより小さくした領域における電気化学反応を抑制することができ、燃料電池内での不均一な温度分布を均一化できる。

【0016】

このような燃料電池において、前記電極は、前記水素透過性金属層であることとしてもよい。水素透過性金属層は、電極として機能させることができるため、温度が他の領域よりもより上昇する領域に対応する部分において、表面積がより小さくなるように水素透過性金属層を形成することで、燃料電池内の不均一な温度分布を均一化できる。

【0017】

また、本発明の燃料電池において、

前記温度分布均一化部は、前記昇温領域に対応する部分がより厚く形成されている前記水素透過性金属層であることとしても良い。

【0018】

このような構成とすれば、水素透過性金属層をより厚く形成した領域における電気化学反応を抑制することができ、燃料電池内での不均一な温度分布を均一化できる。

【0019】

本発明の燃料電池において、アノードに供給される燃料ガスとして、炭化水素系燃料を改質して得られる改質ガスを用いることとしても良い。

【0020】

炭化水素系燃料を改質して得られる改質ガスは、一般に、所定のタンク内に貯蔵する水素ガスに比べて温度が高い。そのため、燃料ガスとして改質ガスを用いる場合には、水素ガスのように温度がより低いガスを用いる場合に比べて、燃料電池の内部の特定の領域で温度が上昇しすぎて温度分布が不均一となりやすい場合がある。したがって、本発明を適用する際に燃料ガスとして改質ガスを用いる場合には、燃料電池内の温度分布状態を均一化して、耐久性低下などの燃料電池の性能低下を防止する効果を、より顕著に得ることができる。

【0021】

また、本発明の燃料電池において、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の内部においてアノードに連通して設けられ、炭化水素系燃料から水素を生成する改質反応を促進する改質触媒を備える改質触媒部であり、

該改質触媒部は、前記炭化水素系燃料および水蒸気が供給されると共に、前記昇温領域に対応する部分における前記改質触媒の含有量が、前記他の領域に対応する部分における



前記改質触媒の含有量より多く形成されることとしても良い。

【0022】

このような構成とすれば、改質触媒では吸熱反応である改質反応が進行するため、改質触媒部において改質触媒の含有量がより多い部分では温度上昇がより抑制されることになる。したがって、昇温領域における温度上昇を抑えることができ、燃料電池内での不均一な温度分布を均一化できる。

【0023】

また、本発明の燃料電池装置において、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の内部においてアノードに連通して設けられ、一酸化炭素と水蒸気とから水素と二酸化炭素とを生成するシフト反応を促進するシフト触媒を備えるシフト触媒部であり、

該シフト触媒部は、水素と一酸化炭素と水蒸気とを含有する改質ガスを供給されると共に、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して温度が他の領域よりも低下する領域に対応する部分における前記シフト触媒の含有量が、前記他の領域に対応する部分における前記シフト触媒の含有量より多く形成されることとしても良い。

【0024】

このような構成とすれば、シフト触媒では発熱反応であるシフト反応が進行するため、シフト触媒部においてシフト触媒の含有量がより多い部分では温度上昇がより促進されることになる。したがって、温度が他の領域よりも低下する領域における温度低下を抑えることができ、燃料電池内での不均一な温度分布を均一化できる。

【0025】

本発明の燃料電池において、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して、前記燃料電池を構成する単セルの同一面内において定まる不均一な温度分布に基づいて設けられることとしても良い。

【0026】

このような構成とすれば、単セルの同一面内における不均一な温度分布を、効果的に均一化できる。

【0027】

また、本発明の燃料電池において、

該燃料電池は、単セルを積層して構成され、

前記温度分布均一化部は、前記燃料電池の運転条件および／または前記燃料電池が配設される環境に起因して、前記燃料電池全体において定まる不均一な温度分布に基づいて設けられることとしても良い。

【0028】

このような構成とすれば、燃料電池全体における不均一な温度分布を、効果的に均一化することができる。

【0029】

本発明の第1の燃料電池装置は、プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を有する燃料電池を備える燃料電池装置であって、

電気化学反応に供するために前記燃料電池に供給される反応ガスの温度および流れ方向に起因する前記燃料電池内の温度分布の不均一化を抑制する温度分布均一化部を備え、

該温度分布均一化部は、

前記燃料電池に前記反応ガスを給排可能な第1および第2の流路と、

前記第1の流路に設けられ、該第1の流路に接続する流路から前記反応ガスが供給されて該反応ガスが前記燃料電池内に導かれるガス導入状態と、前記第1の流路を外部と連通させて前記燃料電池内を通過した前記反応ガスを外部に導くガス排出状態とを切り替える第1の切り替え部と、

前記第2の流路に設けられ、該第2の流路に接続する流路から前記反応ガスが供給されることによる前記ガス導入状態と、前記第2の流路を外部と連通させることによる前記ガス排出状態とを切り替える第2の切り替え部と、を備え、

前記第1の切り替え部および前記第2の切り替え部を制御することによって、前記燃料電池内を通過する前記反応ガスの流れの向きを変更することを要旨とする。

#### 【0030】

以上のように構成された本発明の第1の燃料電池装置によれば、反応ガスが流れる向きを変更することで、温度がより高くなる領域とより低くなる領域とが変化するため、特定の領域の温度が上昇しすぎたり低下しすぎるのが抑えられ、燃料電池内の温度分布状態を均一化することができる。したがって、燃料電池に供給される反応ガスの温度および流れ方向に起因する燃料電池内の温度分布の不均一化が抑制され、燃料電池内の不均一な温度分布に起因して水素透過性金属層の耐久性が低下したり、電池性能が低下するのを防止することができる。

#### 【0031】

本発明の第2の燃料電池装置は、プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を有する燃料電池を備える燃料電池装置であって、

電気化学反応に供するために前記燃料電池に供給される反応ガスの温度と流れ方向、および／または前記燃料電池が配設される環境により定まる前記燃料電池内の温度分布の不均一化を抑制する温度分布均一化部を備え、

該温度分布均一化部は、

前記反応ガスが前記燃料電池内を通過した後前記燃料電池から排出されたガスである反応排ガスの少なくとも一部を、前記反応ガスに混合する反応ガス循環部と、

前記反応排ガスを、前記反応ガスに混合するのに先立って降温させる反応ガス降温部と、を備えることを要旨とする。

#### 【0032】

以上のように構成された本発明の第2の燃料電池装置によれば、燃料電池内に流入する反応ガスの温度を低下させることにより、反応ガスの温度と流れ方向、および／または燃料電池の配設環境に起因して燃料電池内部の特定の領域の温度が上昇し、温度分布状態が不均一化するのを防止することができる。したがって、燃料電池内の不均一な温度分布に起因して水素透過性金属層の耐久性が低下したり、電池性能が低下するのを防止することができる。

#### 【0033】

本発明は、上記以外の種々の形態で実現可能であり、例えば、本発明の燃料電池または燃料電池装置を備える電源システム、あるいは燃料電池を駆動エネルギー源として搭載する移動体などの形態で実現することが可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0034】

次に、本発明の実施の形態を実施例に基づいて以下の順序で説明する。

- A. 第1実施例の燃料電池の構成:
- B. 電気化学反応抑制による温度均一化の構成:
- C. 他の温度分布の例:
- D. 電気化学反応抑制に関する他の実施例:
- E. 温度分布均一化に関する他の実施例:
- F. 変形例:

#### 【0035】

- A. 第1実施例の燃料電池の構成:

図1は、本発明の第1実施例の燃料電池を構成する単セル20の構造の概略を表わす断面模式図である。単セル20は、水素透過性金属層22と電解質層21とから成る電解質部23と、電解質層21上に形成される触媒層24と、触媒層24上に配設されるカソー

ド電極 25 と、これらの構造をさらに外側から挟持するガスセパレータ 27, 29 とを備えている。ガスセパレータ 27 と水素透過性金属層 22 との間には、水素を含有する燃料ガスが通過する単セル内燃料ガス流路 30 が形成されている。また、ガスセパレータ 29 とカソード電極 25 との間には、酸素を含有する酸化ガスが通過する単セル内酸化ガス流路 32 が形成されている。本発明の燃料電池は、図 1 に示す単セル 20 を複数積層したスタック構造を有している。隣り合う単セル 20 間では、隣接するガスセパレータ 27 と 29 との間に、冷媒が流れる冷媒流路 34 が形成される。

#### 【0036】

水素透過性金属層 22 は、水素透過性を有する金属によって形成される層であり、例えば、パラジウム (Pd) または Pd 合金により形成することができる。あるいは、バナジウム (V) 等の 5 族金属 (V の他、ニオブ、タンタル等) または 5 族金属の合金を基材として、少なくともその一方の面 (単セル内燃料ガス流路側の面) に Pd や Pd 合金層を形成した多層膜とすることができる。

#### 【0037】

電解質層 21 は、プロトン伝導性を有する固体電解質から成る層である。電解質層 21 を構成する固体電解質としては、例えば、BaCeO<sub>3</sub>、SrCeO<sub>3</sub> 系のセラミックスプロトン伝導体を用いることができる。この電解質層 21 は、水素透過性金属層 22 上に、上記固体酸化物を生成させることによって形成することができる。電解質層 21 を形成する方法としては、例えば、物理蒸着 (PVD)、化学蒸着 (CVD) など種々の手法を用いることができる。このように電解質層 21 を、緻密な水素透過性金属層 22 上に成膜することにより、電解質層 21 の充分な薄膜化が可能となる。電解質層 21 を薄型化することにより、電解質層 21 の膜抵抗をより低減することができ、従来の固体電解質型燃料電池の運転温度よりも低い温度である約 200～600℃程度で燃料電池を運転することが可能となる。

#### 【0038】

触媒層 24 は、カソードで進行する電気化学反応を促進するために設けられており、白金 (Pt) 等の貴金属を備える層として形成されている。また、カソード電極 25 は、多孔質の発泡金属または金属メッシュの板材、あるいは、カーボンフェルトまたはカーボンペーパー、あるいはセラミックス等、ガス透過性を有する導電性部材によって形成されるガス拡散電極である。本実施例では、触媒層 24 は、カソード電極 25 の電解質層 21 と接する面上に、Pt 等の触媒金属を担持させることによって形成している。この触媒層 24 については、後にさらに詳しく説明する。

#### 【0039】

ガスセパレータ 27, 29 は、カーボンや金属などの導電性材料で形成されたガス不透過な部材である。なお、ガスセパレータ 27, 29 は、ガスセパレータ 29 と接するカソード電極 25 と、同種の材料により形成することが望ましい。ガスセパレータ 27, 29 の表面には、単セル内あるいは単セル間に供給される流体の流路を形成するための所定の凹凸形状が形成されている。

#### 【0040】

燃料電池に供給される燃料ガスとしては、炭化水素系燃料を改質して得られる水素リッチガスを用いても良いし、純度の高い水素ガスを用いても良い。燃料電池に供給される酸化ガスとしては、例えば空気を用いることができる。また、燃料電池に供給される冷媒としては、水などの液体を用いても良いし、空気などの気体を用いることも可能である。本実施例では、燃料ガスとしては約 400℃の改質ガスを用い、酸化ガスおよび冷媒としては約 25℃の空気を用いている。また、図 1 に示すように、本実施例の燃料電池では、すべての単セル間に冷媒流路 34 を設けているが、単セルを所定数積層する毎に冷媒流路 34 を設けても良い。

#### 【0041】

B. 電気化学反応抑制による温度均一化の構成：

燃料電池が発電する際には電気化学反応に伴って熱が生じるため、既述したように燃料

電池内部に冷媒を流通させることによって生じた熱を取り除き、燃料電池の内部温度が上昇しすぎるのを防止している。燃料電池においては、上記冷媒の他、酸化ガスや燃料ガスの流れも、内部の温度分布状態を不均一にする要因となり得る。本実施例の燃料電池では、このような流体の流れに起因する燃料電池内の不均一な温度分布を均一化する温度分布均一化部として、触媒層 24 を設けている。

#### 【0042】

触媒層 24 の構成の説明に先立って、燃料電池内での流体の流れと内部温度の分布について説明する。本実施例では、ガスセパレータ 27, 29 がそれぞれの面上に備える凹凸形状は、燃料ガスと酸化ガスと冷媒とのそれぞれを、全体として一定の方向に導く流路を形成する。このような流路は、図 1 に示すように、例えば互いに平行な複数の溝状流路とすることができるが、流路の形状は、互いに平行な複数の溝状流路に限るものではない。図 2 は、本実施例の燃料電池における流体の流れの様子を、一つの単セル 20 について模式的に表わした説明図である。図 2 に示すように、電解質部 23 (図 2 では「23+24+25」と記載) とガスセパレータ 27 との間に形成される単セル内燃料ガス流路を流れる燃料ガスと、カソード電極 25 (図 2 では「23+24+25」と記載) とガスセパレータ 29 との間に形成される単セル内酸化ガス流路を流れる酸化ガスとは、並行に流れる。また、単セル間に設けられる冷媒流路 (図 2 ではガスセパレータ 27 の上部およびガスセパレータ 29 の下部に形成される) を流れる冷媒は、上記燃料ガスおよび酸化ガスと対向する向きに流れる。

#### 【0043】

図 3 は、図 2 のように燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒を流したときに、本実施例のように特別に温度分布均一化部を設けない場合に、燃料電池を構成する一つの単セル面において生じる温度分布の様子を表わす説明図である。図 3 では、横軸において、単セル面における位置を、単セル 20 内を流れる流体に対応させて一次的に表わしており、単セル面における各位置での温度を、縦軸方向に表わしている。また、図中、各流体の流れの向きを矢印で示している。図 3 に示すように、単セル内の温度は、燃料ガスおよび酸化ガスの入り口部近傍と、この入り口部に対向して位置する冷媒の入り口部付近ほど低く、上記両端の入り口部から離れた中央部に向かうほど高くなる。なお、このような燃料電池内での温度分布の様子は、実験的に測定することが可能であり、また、用いる流体の種類や流速、流体温度、流れ方向、燃料電池を構成する部材の材質などの条件を入力して、シミュレーションによりさらに詳しく予測することも可能である。

#### 【0044】

本実施例の燃料電池が備える触媒層 24 は、既述したように、カソード電極 25 の電解質層 21 と接する面上に、Pt 等の触媒金属を担持させることによって形成しているが、触媒担持量 (触媒含有量) は、カソード電極 25 上の位置によって異なっている。図 4 (A) は、触媒層 24 における触媒担持量を触媒層面全体にわたって表わした説明図である。また、図 4 (B) は、本実施例の燃料電池において、図 3 と同様に流体を流したときの内部の温度分布状態を模式的に表わす。図 4 では、単セル面における位置を、図 3 と同様に単セル 20 内を流れる流体に対応させて一次的に横軸に表わしている。図 4 (A) に示すように、触媒層 24 では、図 3 に示した温度分布状態において、高温になる場所ほど触媒担持量が少なく、低温になる場所ほど触媒担持量が多くなっている。触媒層 24 は、例えば触媒金属である Pt の微粒子を含有するペーストをカソード電極 25 の電解質層 21 と接する面上に塗布することによって形成することができる。このようにペーストを塗布する際に、ペーストの塗布量をカソード電極 25 の場所によって変えることで、図 4 (A) に示すように触媒担持量を異ならせることができる。触媒担持量が少ない場所では、触媒担持量が多い場所に比べて電気化学反応の進行が抑えられるため、温度上昇が抑えられ、結果的に、図 4 (B) に示すように温度分布状態が均一化される。

#### 【0045】

以上のように構成された本実施例の燃料電池によれば、燃料電池に供給される流体の温度および流れ方向により定まる燃料電池内の温度分布状態に基づいて、温度が高くなると

予測される場所ほど触媒担持量を少なくしているため、燃料電池内における実際の温度分布状態を均一化することができる。したがって、燃料電池内の不均一な温度分布状態に起因して水素透過性金属層 22 の耐久性が低下したり、電池性能が低下することを防止できる。

#### 【0046】

##### C. 他の温度分布の例：

既述した実施例では、所定の単セル面上において、燃料ガスおよび酸化ガスは同一方向に流れ、冷媒はこれらと対向する向きに流れる例について説明したが、流体の流れ方向はこれに限るものではなく、流体の流れ方向によって、燃料電池内での温度分布状態は変わる。図5および図7は、異なる流体流れ方向を採用したときに予想される単セル上での温度分布状態の一例を表わす説明図である。

#### 【0047】

図5は、燃料ガスと冷媒とは同一方向に流し、酸化ガスはこれらと対向する向きに流したときに、本実施例のように特別に温度分布均一化部を設けない場合に、燃料電池を構成する一つの単セル面において生じる温度分布の様子を表わす説明図である。なお、図5および後述する図7では、図3と同様に、横軸において、単セル面における位置を、単セル20内を流れる流体に対応させて一次的に表わしており、単セル面における各位置での温度を、縦軸方向に表わしている。また、図中、各流体の流れの向きを矢印で示している。図5の燃料電池では、燃料ガスおよび冷媒の入り口部近傍ほど温度が低く、燃料ガスおよび冷媒の入り口部近傍から下流に向かって次第に温度が上昇し、燃料ガスおよび冷媒の入り口部に対向する酸化ガスの入り口部近傍で再び温度が低下する。上記のように流体を流す燃料電池において、温度分布均一化部として、触媒担持量が領域によって異なる触媒層を設けたときのカソード触媒量を、図4(A)と同様に図6に示す。

#### 【0048】

図7は、酸化ガスおよび冷媒を、燃料ガスと対向する向きに流したときに、本実施例のように特別に温度分布均一化部を設けない場合に、燃料電池を構成する一つの単セル面において生じる温度分布の様子を表わす説明図である。図7の燃料電池では、燃料ガスの流入部近傍で最も温度が高く、燃料ガスの流入部に対向する酸化ガスおよび冷媒の入り口部近傍に向かって次第に温度が低下する。上記のように流体を流す燃料電池において、温度分布均一化部として、触媒担持量が領域によって異なる触媒層を設けたときのカソード触媒量を、図4(A)と同様に図8に示す。

#### 【0049】

いずれの場合にも、高温になる領域ほど触媒担持量が少なく、低温になる領域ほど触媒担持量が多くなっている。これによって、高温になる領域では電気化学反応の進行が抑えられ、結果的に燃料電池内での温度分布状態が均一化される。

#### 【0050】

また、図9は、燃料ガスおよび酸化ガスは同一方向に流し、冷媒をこれらと直交する向きに流したときに、本実施例のように特別に温度分布均一化部を設けない場合に、燃料電池を構成する一つの単セル面において生じる温度分布の様子を表わす説明図である。図9では、その底面が一つの単セル面を表わし、単セル面における温度を単セル面上の対応する位置における高さで表わしている。また、図中、各流体の流れの向きを矢印で示している。図9の場合には、燃料ガスおよび酸化ガスの流れ方向については、これらのガスは燃料電池の内部温度よりも低温であるため、セル面の中程よりも下流側の温度がより高くなる。また、冷媒の流れ方向については、冷媒の流入部近傍において最も温度は低くなる。このような燃料電池においても、高温になる領域における発熱が抑えられるように、同様の温度分布均一化部を設ければよい。いずれの場合にも、既述した実施例の構成を適用して、燃料電池内の温度分布においてより高温になると予測される領域ほど、電気化学反応がより抑制されるように、温度分布均一化部を設けることで、燃料電池の内部温度を均一化する同様の効果を得ることができる。

#### 【0051】

一般に、温度の低い流体の流入部付近は温度がより低くなるため、低温の流体、例えば冷媒および／または酸化ガスの流入部から離れるに従い温度が上昇し、全体として燃料電池内の温度分布状態が不均一となる。そのため、上記低温流体の流入部から離れた領域ほど発熱が抑えられるように、温度均一化部を設ければよい。また、改質器から排出された改質ガスは、所定のタンク内に貯蔵した水素ガスに比べて温度が高いため、燃料ガスとして改質ガスを用いる場合には、燃料電池の内部の特定の領域で温度が上昇しすぎて温度分布がより不均一となりやすい場合がある。そのため、燃料ガスとして改質ガスを用いる場合には、本発明を適用して上記特定の領域における温度上昇を抑制することで、燃料電池内の温度分布状態を均一化することによる効果をより顕著に得ることが可能となる。

#### 【0052】

また、複数の冷媒を用いて燃料電池内に複数の冷却系統を設けることとしても良く、この場合にも、各流体温度や各流体における熱交換の効率によって、燃料電池内部温度のばらつき状態は変化する。その他、燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒を一方向に流す構成に代えて、流れの向きが途中で変更されるように流路を形成するなど、異なる構成としても良い。流体の流れ条件を設定すれば、内部温度の分布状態を予め予測し、あるいは実験的に調べることができ、その結果に基づいて温度分布均一化部を設ければよい。

#### 【0053】

図3および図10～図12に基づいて、単セル面における温度分布状態のばらつきについて説明したが、単セルを複数積層したスタック構造を有する燃料電池では、単セルの積層方向を含めたスタック構造全体の温度分布状態を考慮して、温度分布均一化部を設けることが望ましい。

#### 【0054】

例えば、燃料電池内の温度分布状態が、供給される流体の影響のみを受けると仮定したときに、各単セルにおいて図2のように各流体が流れるならば、スタック構造を構成するすべての単セルにおいて、第1ないし第4実施例と同様に温度分布均一化部を設ければよい。また、スタック構造は、外周部ほど放熱により低温になるという一般的な性質を有している。したがって、より十分な効果を得るには、ガス流れに基づく温度分布状態と、放熱に基づく温度分布状態とを組み合わせるなど、考えられる条件による影響を組み合わせ得られるスタック構造全体の温度分布状態に基づいて、スタック構造全体で温度分布均一化の効果が得られるように、温度分布均一化部を設けることが望ましい。さらに、燃料電池の内部温度は、燃料電池が設置された環境の影響を受ける。例えば燃料電池の近傍に所定の高温装置を配置する場合には、この高温装置に近い側ほど燃料電池の内部温度は高くなる。このように、燃料電池内部の温度分布状態に影響する種々の要因を併せて考慮して温度分布均一化部を設けることで、効果を高めることができる。なお、このようにスタック構造全体の温度分布状態に基づいて温度分布均一化部を設ける場合には、温度分布均一化部は、単セル内の同一面内ではなく、スタック構造全体として設けることとしても良い。例えば、第1実施例のようにカソード触媒量を異ならせることで温度分布状態の均一化を図る場合には、スタック構造の一部では、所定の単セルはカソード触媒量が一樣に少ないカソード電極を備え、他の単セルはカソード触媒量が一樣に多いカソード電極を備えることとしても良い。

#### 【0055】

D. 電気化学反応抑制に関する他の実施例：

D-1. 第2実施例：

図10は、第2実施例の燃料電池の構成の概略を説明する断面模式図である。図10では、第2実施例の燃料電池に関わる構成のうち、電解質部23およびカソード電極125についてのみ表わしている。第2実施例の燃料電池は、第1実施例と同様の燃料電池において、触媒層24およびカソード電極25に代えて、カソード電極125を備えている。カソード電極125は、触媒活性を有する貴金属から成る金属薄膜である。カソード電極125は、例えば、PtやPt合金、あるいはPdやPd合金など、電気化学反応の触媒として働く貴金属により形成すればよい。水素透過性を有しないPt等の金属によってカ

ソード電極 125 を形成する場合には、カソード電極 125 におけるガス透過性を確保できるように、カソード電極 125 を十分に薄く形成すればよい。このようなカソード電極 125 は、例えば、水素透過性金属層 22 上に成膜された電解質層 21 上にメッキ処理を施すことにより形成することができる。あるいは、PVD や CVD により形成することとしても良い。なお、第 2 実施例および後述する第 3、第 4 実施例の燃料電池では、第 1 実施例の燃料電池と同様の方向に、燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒が流される場合について説明する。

#### 【0056】

図 10 に示すように、カソード電極 125 は、その表面に所定の凹凸形状が設けられており、この凹凸形状を異ならせることによって、電極表面積が同一面内で変化するように形成されている。このような凹凸形状は、例えば、アルゴンイオンエッチングやショットブラスト等で、カソード電極 125 を形成するための金属層表面を処理することにより、形成することができる。本実施例では、これらの方法により上記凹凸形状を形成する際に、カソード電極 125 の場所によって凹凸形状を異ならせることによって、カソード電極 125 における単位面積当たりの実際の表面積を、同一面内で異ならせている。

#### 【0057】

図 11 は、カソード電極 125 における表面積の分布の様子を、図 4 と同様に流体の流れ方向に対応させて表わす説明図である。カソード電極 125 では、図 3 に示した温度分布状態において、高温になる場所ほどカソード面積が小さく、低温になる場所ほどカソード面積が大きくなっている。カソード面積が小さい領域では、カソード面積が大きい領域に比べて電気化学反応の進行が抑えられるため、温度上昇も抑えられる。したがって、第 1 実施例と同様に、燃料電池内部の温度分布状態を均一化することができる。

#### 【0058】

D-2. 第 3 実施例：

図 12 は、第 3 実施例の燃料電池の構成の概略を説明する断面模式図である。第 3 実施例の燃料電池は、第 1 実施例と同様の燃料電池において、水素透過性金属層 22 に代えて、水素透過性金属層 222 を備えている。図 12 では、図 10 と同様に、ガスセパレータ 27, 29 については記載を省略している。

#### 【0059】

水素透過性金属層 222 は、水素透過性金属層 22 と同様の水素透過性金属によって形成されているが、その表面に所定の凹凸形状が設けられており、この凹凸形状を異ならせることによって、電極表面積が同一面内で変化するように形成されている。このような凹凸形状は、第 2 実施例のカソード電極 125 と同様に、例えば、アルゴンイオンエッチングやショットブラスト等で、水素透過性金属層 222 の表面を処理することにより、形成することができる。本実施例では、これらの方法により上記凹凸形状を形成する際に、水素透過性金属層 222 の場所によって凹凸形状を異ならせることによって、水素透過性金属層 222 の表面積を、同一面内で異ならせている。このように凹凸形状を異ならせる処理は、水素透過性金属層を形成した後、水素透過性金属層上に電解質層 21 を成膜するのに先立って、電解質層 21 を設けるのとは反対の面側に対して施すこととしても良いし、水素透過性金属層上に電解質層 21 を成膜した後に、電解質層 21 を成膜したのとは異なる側の面上に施すこととしても良い。

#### 【0060】

ここで、図 12 に示した水素透過性金属層 222 は、第 2 実施例のカソード電極 125 と同様に、図 3 に示した温度分布状態において、高温になる場所ほど表面積が小さく、低温になる場所ほど表面積が大きくなっている。水素透過性金属層 222 は、アノード電極として機能するため、水素透過性金属層 222 の表面積をより大きくすることによって、電気化学反応が進行する電極表面積をより大きくすることができる。そのため、このような構成とすることで、表面積が小さい領域では表面積が大きい領域に比べて電気化学反応の進行が抑えられ、温度上昇も抑えられる。したがって、燃料電池内部の温度分布状態を均一化することができる。



## 【0061】

## D-3. 第4実施例:

図13は、第4実施例の燃料電池の構成の概略を説明する断面模式図である。第4実施例の燃料電池は、第1実施例と同様の燃料電池において、水素透過性金属層22に代えて、水素透過性金属層322を備えている。図13では、図10と同様に、ガスセパレータ27, 29については記載を省略している。

## 【0062】

水素透過性金属層322は、水素透過性金属層22と同様の水素透過性金属によって形成されているが、その厚みが、同一面内で変化するように形成されている。すなわち、水素透過性金属層322は、図3に示した温度分布状態において、高温になる場所ほど厚く、低温になる場所ほど薄く形成されている。水素透過性金属層が厚いほど、水素透過性金属層における水素の透過量が抑えられるため、このような構成とすることで、水素透過性金属層が厚い領域では薄い領域に比べて電気化学反応の進行が抑えられ、温度上昇も抑えられる。したがって、燃料電池内部の温度分布状態を均一化することができる。

## 【0063】

水素透過性金属層322は、水素透過性金属層22と同様に、PdやPd合金で形成する他、5族金属を含有する基材上の少なくともガス流路側表面にPdを含有する層を設ける構成とすることができる。少なくとも燃料ガス流路側の表面にPdを含有する層を設けることで、水素透過性金属層322を水素が透過する際に水素分子を解離させる活性を確保することができる。基材層上にPd含有層を設ける場合には、基材層とPd含有層とのうちの少なくとも一方の厚みを変化させることによって、結果的に図13に示すように水素透過性金属層322全体の厚みを変化させればよい。

## 【0064】

なお、既述した第1ないし第4実施例では、図3に示した温度分布状態において高温になる場所と低温になる場所との間で、触媒担持量、カソード面積、アノード面積あるいは水素透過性金属層厚さを、徐々に変化させることとしたが、段階的に変化させることとしても良い。例えば、電極や水素透過性金属層を、上記高温になる場所から低温になる場所へと複数の領域に分割し、この領域毎に、触媒担持量、カソード面積、アノード面積あるいは水素透過性金属層厚さが段階的に変化する構成としても良い。また、触媒担持量、カソード面積、アノード面積あるいは水素透過性金属層厚さを変化させる構成を、複数組み合わせ合わせて、燃料電池内部の温度分布状態の均一化を図ることとしても良い。

## 【0065】

## D-4. 発電に伴う発熱量を変えるその他の例:

燃料電池の内部温度を均一化するための温度分布均一化部として、既述した第1実施例は、触媒担持量が領域によって異なる触媒層を備え、第2実施例は、カソード面積が領域によって異なるカソード電極を備え、第3実施例は、アノード面積が領域によって異なる水素透過性金属層を備え、第4実施例は、厚みが領域によって異なる水素透過性金属層を備えている。燃料電池の内部温度を均一化する同様の効果は、電気化学反応の抑制を伴うさらに他の構成によっても実現可能である。例えば、水素透過性金属層の厚みを変化させない場合であっても、水素透過性金属層の内部構成を変化させることで、同様の効果を得ることが可能である。以下に、水素透過性金属層における内部構成(組成および/または水素透過性金属の配置状態)を領域によって変化させることで、より高温になると予想される領域における水素透過量を抑制し、発電に伴う発熱を抑制して、燃料電池内の温度分布状態を均一化する構成について説明する。

## 【0066】

図14は、水素透過性金属層における内部構成を領域によって変化させた構成の一例を示す断面模式図である。図14に示す燃料電池は、第1実施例と同様の燃料電池において、水素透過性金属層22に代えて水素透過性金属層422を備えている。なお、図14および後述する図15ないし図17では、主として水素透過性金属層の構成について模式的に示している。水素透過性金属層422は、5族金属を含有する基材と、基材上に設けら



れたPd含有層とを備えており、高温になると予想される領域ほど、Pd含有層が厚く形成されると共に5族金属層が薄く形成されている。Pdは、5族金属に比べて水素透過性能が低いため、このような構成とすることにより、Pd含有層が厚い領域では薄い領域に比べて電気化学反応の進行が抑えられ、燃料電池内部の温度分布状態を均一化することができる。なお、図14に示すようにPd層と5族金属層との厚みを徐々に変化させるのではなく、水素透過性金属層を同一面内で複数の領域に分割して、分割した各領域毎に、段階的に厚みを変化させることとしても良い。また、Pd含有層は、5族金属を含有する基材の両面に設けることとしても良い。

#### 【0067】

図15は、水素透過性金属層における内部構成を領域によって変化させた他の例を示す断面模式図である。図15に示す燃料電池は、第1実施例と同様の燃料電池において、水素透過性金属層22に代えて水素透過性金属層522を備えている。水素透過性金属層522は、高温になると予想される特定の領域はPd含有層によって形成されており、他の領域は、5族金属を含有する基材と、基材上に設けられたPd含有層とによって形成されている。Pdは、5族金属に比べて水素透過性能が低いため、このような構成とすることにより、Pd含有層のみから成る領域では他の領域に比べて電気化学反応の進行が抑えられ、燃料電池内部の温度分布状態を均一化することができる。

#### 【0068】

あるいは、より高温になると予想される所定の領域では、水素透過性金属層が備える水素透過性金属割合を、より低温になると予測される領域で水素透過性金属層が備える水素透過性金属割合よりも低くすることとしても良い。図16は、第1実施例と同様の燃料電池において、水素透過性金属層22に代えて水素透過性金属層622を備える燃料電池の構成を示す。ここでは、水素透過性金属層622全体が、5族金属を含有する基材と、基材上に設けられたPd含有層とを備えており、高温になると予測される領域の基材は5族金属合金によって形成され、それ以外の領域はより純度の高い5族金属によって形成されている。また、図17は、第1実施例と同様の燃料電池において、水素透過性金属層22に代えて水素透過性金属層722を備える燃料電池の構成を示す。ここでは、水素透過性金属層722全体がPd含有層によって形成されており、高温になると予測される領域は純度の高いPdによって形成され、それ以外の領域はPd合金によって形成されている。このような構成とすれば、水素透過性金属割合が低い領域では他の領域に比べて電気化学反応の進行が抑えられ、燃料電池内部の温度分布状態を均一化することができる。いずれの場合にも、燃料電池内の温度分布においてより高温になると予想される領域では、相対的に水素透過量を抑え電気化学反応の進行を抑制することで、同様の効果を得ることができる。

#### 【0069】

第2ないし第4実施例および既述したその他の例の内のいずれの構成も、図5、図7および図9に示したように流体の流れを種々に変更する場合にも適用可能である。流体の流れ方向が異なる場合にも、流体の流れに応じて生じる温度分布状態に基づいて、温度分布均一化部として、触媒担持量を異ならせた電極や表面積を異ならせた電極、あるいは水素透過性金属層の厚さを異ならせた電解質部等を設ければよい。これにより、高温になる領域で電気化学反応を抑え、温度分布状態を均一化する同様の効果を得ることができる。また、流体の流れ方向以外の温度分布ばらつき要因を考慮して、スタック構造全体で温度分布状態が均一化するように、各単セル毎にスタック構造内での位置に応じて、高温になる領域では電気化学反応を抑えるように、温度分布均一化部を設けることとしても良い。

#### 【0070】

E. 温度分布均一化に関する他の実施例:

E-1. 第5実施例:

既述した実施例が備える温度分布均一化部は、高温部における電気化学反応を抑制することで温度分布状態の均一化を図ったが、異なる種類の温度分布均一化部を設けることとしても良い。図18は、第5実施例の燃料電池装置の構成を表わす説明図である。

## 【0071】

第5実施例の燃料電池装置は、第1実施例と同様に、図1に示した単セル20と類似する構造の単セルを複数積層したスタック構造を有する燃料電池40を備えており、第1実施例と同様の燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒が供給される。ここで、第5実施例の燃料電池装置は、触媒量を異ならせた触媒層を温度分布均一化部として備える第1実施例とは異なり、燃料電池に供給する燃料ガスの流れ方向を切り替える温度分布均一化部を備えることを特徴としている。図18では、燃料ガスの流れ方向に関わる構成のみを示している。

## 【0072】

燃料電池40に対しては、燃料ガス流路41を介して燃料ガスが供給される。燃料ガス流路41は、第1分岐路42および第2分岐路43に分岐する。第1分岐路42は、さらに、第1流路44と第1排気路46とに分岐する。第1分岐路42が第1流路44および第1排気路46に分岐する分岐部には、これら3つの流路の連通状態を調節する切り替え弁48が設けられている。第1流路44は、燃料電池40に接続しており、燃料電池40内の単セル内燃料ガス流路に連通している。第2分岐路43は、さらに、第2流路45と第2排気路47とに分岐する。第2分岐路43が第2流路45および第2排気路47に分岐する分岐部には、これら3つの流路の連通状態を調節する切り替え弁49が設けられている。第2流路45は、燃料電池40に接続しており、燃料電池40内の単セル内燃料ガス流路に連通している。

## 【0073】

本実施例の燃料電池装置では、切り替え弁48、49を制御することによって、燃料電池40内部での燃料ガスの流れ方向を、第1の方向と、これとは逆向きの第2の方向との間で切り替え可能となっている。燃料ガスの流れ方向として第1の方向が選択されるときには、燃料ガスは、第1分岐路42および第1流路44を介して燃料電池40内に流入して、第2流路45および第2排気路47を介して外部に排出される。また、燃料ガスの流れ方向として第2の方向が選択されるときには、燃料ガスは、第2分岐路43および第2流路45を介して燃料電池40内に流入して、第1流路44および第1排気路46を介して外部に排出される。

## 【0074】

第5実施例の燃料電池40の単セル面において、例えば、酸化ガスと冷媒との流れが対向しており、燃料ガスがこれら酸化ガス及び冷媒と平行に流される場合には、燃料ガスの流れが第1の方向である状態は図3に対応し、燃料ガスの流れ方向が第2の方向である状態は図5に対応する（ただし、図3と図5とでは、流れの切り替えを行なわない酸化ガス及び冷媒の流れの向きが互いに逆向きに表わされている）。したがって、切り替え弁48、49を制御して、燃料ガスの流れ方向を切り替えることで、単セル面での温度分布は、図3の状態と図5の状態とが切り替わる。図3の状態と図5の状態とでは、温度が高くなる領域と低くなる領域とは異なっているため、このように燃料ガスの流れ方向を切り替えることで、特定の領域で温度が上昇しすぎたり低下しすぎることが抑えられ、温度分布状態を均一化することができる。

## 【0075】

なお、切り替え弁48、49を制御することによる燃料ガスの流れ方向の切り替えは、例えば、所定の時間間隔で行なうこととすればよい。あるいは、燃料電池40の所定部位の温度あるいはアノードオフガス温度を検出して、上限となる基準温度以上となったとき、あるいは下限となる基準温度以下となったときに切り替えを行なうこととしても良い。

## 【0076】

上記第5実施例では、燃料ガスの流れ方向を切り替える温度分布均一化部を設けることとしたが、電気化学反応に供するもう一方の反応ガスである酸化ガスの流れ方向を切り替えることとしても良い。例えば、第1実施例と同様の燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒が供給される燃料電池において、燃料ガスと冷媒との流れが対向しており、酸化ガスがこれら燃料ガス及び冷媒と平行に流される場合に、酸化ガスの流れ方向を切り替えることとしても良い。このような場合には、酸化ガスの流れ方向が第1の方向である状態が図3に対応

するとするならば、酸化ガスの流れ方向が第2の方向である状態は図7に対応することになる。このように酸化ガスの流れ方向を切り替えて、図3の状態と図7の状態とを切り替えることによって、温度分布状態を均一化する同様の効果を得ることができる。

【0077】

E-2. 第6実施例:

図19は、第6実施例の燃料電池装置の構成を表わす説明図である。第6実施例の燃料電池装置は、第5実施例と同様の燃料電池40を備えており、温度分布均一化部として、酸化ガスの循環に関わる構造を備えている。図19では、酸化ガスの循環に関わる構成のみを示している。

【0078】

燃料電池40に対しては、酸化ガス供給路51を介して酸化ガスが供給され、燃料電池40のカソードを経由したカソードオフガスは、燃料電池40から酸化ガス排出路52に排出される。酸化ガス供給路51と酸化ガス排出路52とを接続するように酸化ガス循環路53が設けられており、カソードオフガスの少なくとも一部は、酸化ガス循環路53を経由して、燃料電池40に供給する酸化ガスに混合可能となっている。酸化ガス循環路53には、熱交換器50が設けられており、酸化ガスに混合するカソードオフガスは、混合に先立ってこの熱交換器50において冷却される。酸化ガス循環路53と酸化ガス供給路51との接続部には切り替え弁54が設けられている。この切り替え弁54を制御することによって、酸化ガスに供給するカソードオフガス量を調節することができ、カソードオフガス量を調節することで、燃料電池40に供給する酸化ガスの温度を調節可能になる。

【0079】

第6実施例の燃料電池装置によれば、酸化ガスの温度を予め低下させてから燃料電池40に供給することで、燃料電池40内で温度が上昇しすぎる領域が発生するのを防止することができる。例えば各単セル面において、酸化ガスを、燃料ガス及び冷媒と対向する向きに流し、単セル面での温度分布状態が図5と同様になるべき状態とした場合には、燃料電池に流入する酸化ガス温度を低下させることで、酸化ガス流入部付近の温度を低下させることができる。このように、温度が上昇しすぎる領域の発生を抑えることにより、燃料電池40内の温度を均一化することができる。また、図5に示したように流体の温度および流れ方向に起因して燃料電池40の内部温度が不均一化する場合以外であっても、燃料電池40に供給する酸化ガス温度を低下させることで温度分布状態を均一化する効果を得ることができる。例えば、燃料電池40が配設される環境によって、酸化ガス流れの上流側が外部から暖められて昇温しやすい場合には、供給する酸化ガス温度を低下させることで、燃料電池40内部の温度分布状態の均一化を図ることが可能となる。

【0080】

なお、カソードオフガスの温度を低下させるために設ける熱交換器50は、種々の冷媒を用いることが可能である。例えば、燃料ガスとして改質ガスを用いる場合に、水蒸気改質反応に供するための水を冷媒として用いるならば、改質反応に供するのに先立って水の加熱を行なうことができる。あるいは、熱交換器を設けてカソードオフガスを冷却する構成に代えて、カソードオフガスを用いて改質器を加熱して、カソードオフガスを降温させることとしても良い。あるいは、ラジエータなどを用いてカソードオフガスからの放熱のみを行なうこととしても良く、カソードオフガスを降温させることができればよい。

【0081】

上記第6実施例では、酸化ガスを循環させることによって酸化ガスを降温させる温度分布均一化部を設けることとしたが、もう一方の反応ガスである燃料ガスを循環させることによって燃料ガスを降温させることとしても良い。この場合にも、燃料電池に供給する燃料ガスの温度を低下させることで、燃料電池内で温度が上昇しすぎる領域が発生するのを防止し、温度分布状態を均一化する同様の効果を得ることができる。なお、燃料ガスとして、純度の高い水素ガスを用いる場合にも、改質ガスを用いる場合にも、同様に本実施例を適用することができる。

【0082】

## E-3. 第7実施例:

第1ないし第6実施例では、燃料電池のアノードに対して水素を含有する燃料ガスを供給しているが、燃料電池内のアノード側のガス流路内に改質触媒を担持させ、改質反応に供するための炭化水素系燃料と水蒸気とを燃料電池に供給することとしても良い。このような構成を第7実施例として以下に説明する。

## 【0083】

燃料電池内のアノード側のガス流路内に改質触媒を担持させるには、単セル内燃料ガス流路を形成するガスセパレータ表面に、改質触媒を担持させればよい。例えば、ガスセパレータを金属薄板により形成する場合には、金属製のガスセパレータの表面をアルミナやコージェライト等でコーティング後に焼成することでガスセパレータ上に多孔質層を形成し、この多孔質層上に改質触媒を担持させればよい。改質触媒の担持は、改質触媒として例えば白金を用いる場合には、上記多孔質層を形成したガスセパレータを白金化合物の溶液中に浸漬させて、イオン交換法や含浸法あるいは蒸発乾固等の周知の方法により行なえばよい。

## 【0084】

図20は、第1実施例と同様に燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒を流し、温度分布均一化部を設けなければ単セル面に生じる温度分布が図3と同様になる本実施例の燃料電池において、単セル内燃料ガス流路を形成するセパレータ表面に担持させた改質触媒量を、図4(A)と同様に表わした説明図である。図20に示すように、図3に示した温度分布状態において高温になる場所ほど改質触媒の担持量が多く、低温になる場所ほど改質触媒の担持量が少なくなっている。

## 【0085】

このような構成とすれば、高温になると予想される領域ほど、改質触媒の担持量が多いため、吸熱反応である水蒸気改質反応がより活発に進行し、温度上昇を抑えることができる。したがって、温度分布状態を均一化することができる。

## 【0086】

なお、図20では、単セル面において、温度分布均一化部を設けない場合に予想される温度分布状態に応じて、ガスセパレータ上に担持させる改質触媒量を徐々に変化させることとしたが、段階的に変化させることとしても良い。例えば、改質触媒を担持させる際に、多孔質層を形成したガスセパレータ表面に対して、温度分布状態に応じた所定の領域毎にマスキングを施し、担持される改質触媒量を領域毎に異ならせることとすればよい。

## 【0087】

あるいは、単セル内燃料ガス流路を形成するガスセパレータ表面に改質触媒を担持させるのではなく、発電の場となる単セルとは別に改質触媒を担持させた触媒担持層を設けることとしても良い。このような場合には、燃料電池スタックを形成する際に、単セルを所定枚数積層する毎に触媒担持層を積層し、燃料電池内では、触媒担持層において改質反応が進行しつつ、改質反応で生じた水素が各単セルに供給されて電気化学反応に供される構成とすればよい。上記構成とすれば、各触媒担持層において図20に示すように触媒担持量を面上で変化させることで、単セルと触媒担持層との間の伝熱により、同様の効果を得ることができる。

## 【0088】

また、単セル面に平行な面上において改質触媒の担持量を異ならせる構成に代えて、あるいはこれに加えて、スタック構造内での積層位置に応じて、改質触媒の担持量を異ならせることとしても良い。例えば、スタック構造の端部ほど温度が低下しやすい場合には、端部に配設されるガスセパレータ上に担持させる改質触媒量をより少なくし、スタック構造の中央部に配設されるガスセパレータ上に担持させる改質触媒量をより多くすればよい。

## 【0089】

## E-4. 第8実施例:

第7実施例では、高温になると予想される領域ほど改質触媒量を多くして、吸熱反応を

活発に行なわせることとしたが、さらにシフト反応を促進するシフト触媒を用いて、温度分布状態の均一化を図ることとしても良い。このような構成を第8実施例として以下に説明する。

#### 【0090】

本実施例では、燃料電池内部の温度条件下において、改質反応を活発に促進する触媒と、一酸化炭素と水蒸気とから水素と二酸化炭素とを生じるシフト反応を活発に促進する触媒とを用いている。改質触媒やシフト触媒として用いる触媒は、通常は両方の活性を示すものであるが、以下の実施例では、燃料電池内部の温度条件下において主として改質反応を促進する触媒を改質触媒、主としてシフト反応を促進する触媒をシフト触媒と呼ぶ。改質触媒としては、例えば、銅-亜鉛 (Cu-Zn) 系触媒や、鉄-クロム (Fe-Cr) 系触媒を用いることができる。シフト触媒としては、例えばニッケル (Ni) 系触媒を用いることができる。

#### 【0091】

図21は、本実施例の燃料電池に備えられ単セル内燃料ガス流路を形成するガスセパレータ表面に担持させた触媒の様子を示す説明図である。本実施例では、第1実施例と同様に燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒を流し、温度分布均一化部を設けなければ単セル面に生じる温度分布が図3と同様になる場合を示しており、高温になる領域には改質触媒を担持させ、低温になる領域にはシフト触媒を担持させている。

#### 【0092】

このような構成とすれば、高温になると予想される領域には改質触媒が担持されるため、吸熱反応である水蒸気改質反応が進行し、温度上昇が抑えられる。また、低温になると予想される領域にはシフト触媒が担持されるため、発熱反応であるシフト反応が進行して、温度上昇が促進される。これによって、単セル面における温度分布状態を均一化することができる。

#### 【0093】

なお、図21では、ガスセパレータにおいて、改質触媒とシフト触媒とのうちのいずれかの触媒を領域毎に担持させることとしたが、両方の触媒を全面に担持させると共に、領域毎に各々の触媒の担持量を異ならせることとしても良い。高温になる領域では改質触媒の担持量をより多くし、低温になる領域ではシフト触媒の担持量をより多くすれば、同様の効果が得られる。また、上記のように改質触媒とシフト触媒の担持量を領域毎に異ならせた触媒層を単セルとは別個に設けて、触媒層を単セルと共に積層してスタック構造を形成し、触媒層で生成した水素を電気化学反応に供することとしても良い。あるいは、スタック構造内での積層位置に応じて温度分布の不均一が生じる場合には、高温になる位置に配設されるガスセパレータでは改質触媒の担持量を多くし、低温になる位置に配設されるガスセパレータではシフト触媒の担持量を多くすればよい。

#### 【0094】

E-5. 第9実施例:

燃料電池に対して改質ガスを供給し、単セル内燃料ガス流路を形成するガスセパレータ表面にはシフト触媒を担持させる構成も可能である。このような構成を第9実施例として以下に説明する。なお、用いるシフト触媒は、第8実施例と同様のものを利用可能であるが、本実施例では水蒸気改質反応とシフト反応とのバランスを考慮する必要がないため、シフト反応を促進する十分な活性を有している触媒であれば利用可能である。

#### 【0095】

図22は、第1実施例と同様に燃料ガス、酸化ガスおよび冷媒を流し、温度分布均一化部を設けなければ単セル面に生じる温度分布が図3と同様になる本実施例の燃料電池において、単セル内燃料ガス流路を形成するセパレータ表面に担持させたシフト触媒量を、図4(A)と同様に表わした説明図である。図22に示すように、図3に示した温度分布状態において、高温になる場所ほどシフト触媒の担持量が少なく、低温になる場所ほどシフト触媒の担持量が多くなっている。

#### 【0096】

このような構成とすれば、低温になると予想される領域ほどシフト触媒の担持量が多いため、発熱反応であるシフト反応がより活発に進行し、温度上昇を促進することができる。したがって、単セル面における温度分布状態を均一化することができる。なお、シフト触媒量によって温度分布均一化を図る場合にも種々の変形が可能である。ガスセパレータ上に担持させるシフト触媒量を段階的に変化させることとしても良いし、あるいはガスセパレータ上にシフト触媒を担持させる構成に代えて、単セルとは別個にシフト触媒を備える触媒担持層を設けることとしても良い。また、スタック構造内での積層位置に応じて、シフト触媒の担持量を変化させることとしても良い。

【0097】

F. 変形例：

なお、この発明は上記の実施例や実施形態に限られるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲において種々の態様において実施することが可能であり、例えば次のような変形も可能である。

【0098】

F1. 変形例1：

既述した実施例では、水素透過性金属層上に直接電解質層21を成膜することとしたが、水素透過性金属層と電解質層21の間には、必要に応じて貴金属系の触媒層をさらに設けることとしても良い。また、水素透過性金属層とガスセパレータ27との間に、さらに、導電性を有するガス透過性部材を配設することとしても良い。例えば、水素透過性金属層を、セラミックスなどの基材上に形成することとし、水素透過性金属層とガスセパレータ27との間に、上記セラミックスなどの基材からなる層を介在させることとしても良い。

【0099】

F2. 変形例2：

図1に示した単セル20では、電解質層21のアノード側に水素透過性金属層22を配設したが、アノード側の配置とカソード側の配置とを入れ替えることとしても良い。すなわち、電解質層21のカソード側に水素透過性金属層を配設すると共に、電解質層21のアノード側に、触媒層24およびカソード電極25と同様のアノード電極を配設すればよい。この場合には、水素透過性金属層のカソード側に、さらに触媒層を設けることとしても良い。このような燃料電池において、例えば第1実施例を適用する場合には、上記アノード側の触媒層とカソード側の触媒層とのうちの少なくとも一方の触媒層が、第1実施例と同様に領域によって触媒担持量が異なる構成とすればよい。電極表面積を異ならせる構成や水素透過性金属層の厚みを異ならせる構成も、同様に適用できる。

【0100】

その他、電解質層と水素透過性金属層とを備える燃料電池において、電解質層および／または水素透過性金属層を複数備えるなど、異なる構成とすることが可能である。いずれの場合にも、電解質層の面上に水素透過性金属層を配設した燃料電池において、触媒担持量を異ならせた触媒層や、電極表面積を異ならせた電極や、厚みを異ならせた水素透過性金属層などの温度分布均一化部を設けることで、同様の効果を得ることができる。

【0101】

F3. 変形例3：

また、燃料電池は固体電解質型燃料電池以外の種類であっても良く、電解質層がプロトン伝導性を有しており、電解質層の面上に水素透過性金属層を備えていれば、本発明を適用することが可能である。例えば、固体高分子型燃料電池とすることができる。固体高分子膜の両面に緻密な水素透過性金属層を設けた燃料電池とすれば、水素透過性金属層によって固体高分子膜の水分を保持することによって、従来の固体高分子型燃料電池よりも高い動作温度を実現可能となる。あるいは、固体高分子膜に代えて、ヘテロポリ酸系や含水 $\beta$ アルミナ系などセラミック、ガラス、アルミナ系に水分を含ませた膜を電解質層として用いることとしても良い。このような場合にも、本発明を適用し、温度分布均一化部をもうけることで、同様の効果を得ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0102】

【図1】単セル20の構造の概略を表わす断面模式図である。

【図2】燃料電池における流体の流れの様子を、一つの単セル20について表わした説明図である。

【図3】本実施例の燃料電池を構成する一つの単セル面における温度分布の様子を表わす説明図である。

【図4】触媒層24における触媒担持量と、触媒層24を設けたときの温度分布状態を表わす説明図である。

【図5】一つの単セル面における温度分布の様子を表わす説明図である。

【図6】カソード触媒量の分布の様子を表わす説明図である。

【図7】一つの単セル面における温度分布の様子を表わす説明図である。

【図8】カソード触媒量の分布の様子を表わす説明図である。

【図9】一つの単セル面における温度分布の様子を表わす説明図である。

【図10】第2実施例の燃料電池の構成の概略を説明する断面模式図である。

【図11】カソード電極125における表面積の分布の様子を表わす説明図である。

【図12】第3実施例の燃料電池の構成の概略を説明する断面模式図である。

【図13】第4実施例の燃料電池の構成の概略を説明する断面模式図である。

【図14】水素透過性金属層における内部構成を変化させた構成の一例を示す断面模式図である。

【図15】水素透過性金属層における内部構成を変化させた構成の一例を示す断面模式図である。

【図16】水素透過性金属層における内部構成を変化させた構成の一例を示す断面模式図である。

【図17】水素透過性金属層における内部構成を変化させた構成の一例を示す断面模式図である。

【図18】第5実施例の燃料電池装置の構成を表わす説明図である。

【図19】第6実施例の燃料電池装置の構成を表わす説明図である。

【図20】ガスセパレータ上に担持させた改質触媒量を表わす説明図である。

【図21】第8実施例のガスセパレータ表面に担持させた触媒の様子を表わす説明図である。

【図22】ガスセパレータ上に担持させたシフト触媒量を表わす説明図である。

## 【符号の説明】

## 【0103】

20…単セル

21…電解質層

22, 222, 322, 422, 522, 622, 722…水素透過性金属層

23…電解質部

24…触媒層

25, 125…カソード電極

27, 29…ガスセパレータ

30…単セル内燃料ガス流路

32…単セル内酸化ガス流路

34…冷媒流路

40…燃料電池

41…燃料ガス流路

42…第1分岐路

43…第2分岐路

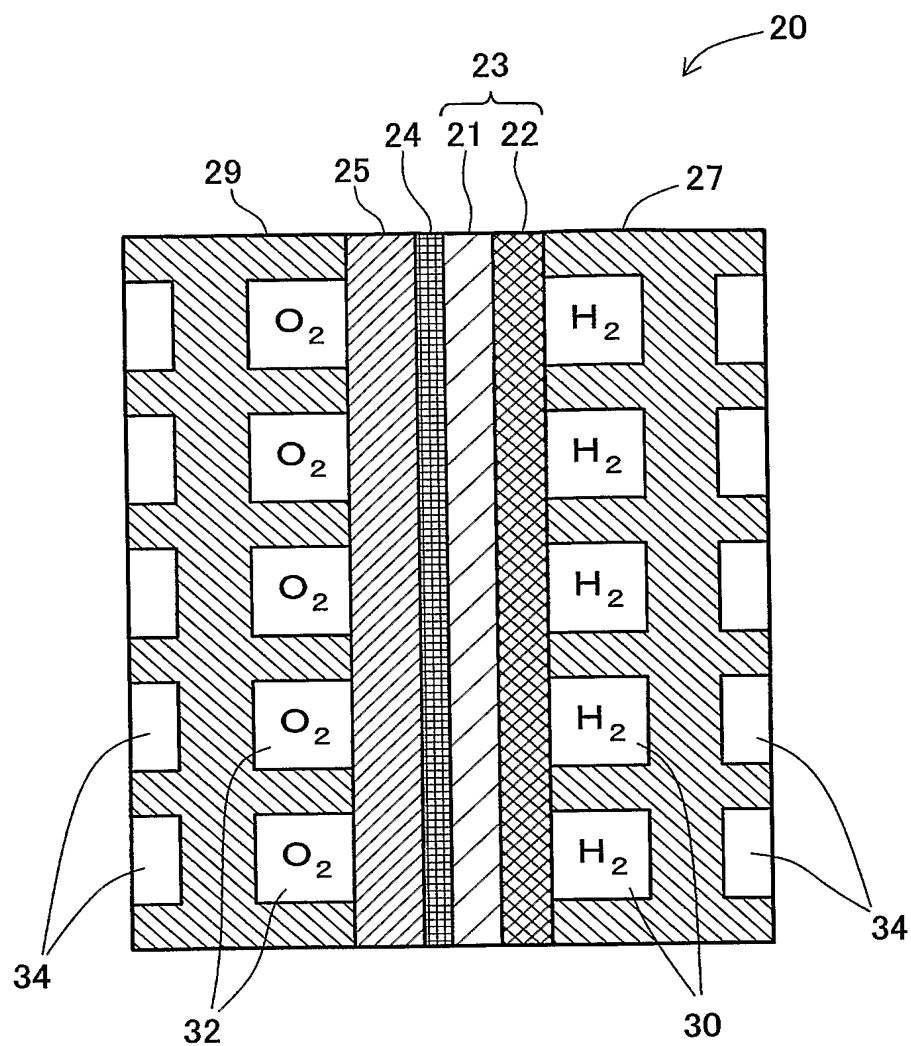
44…第1流路

45…第2流路

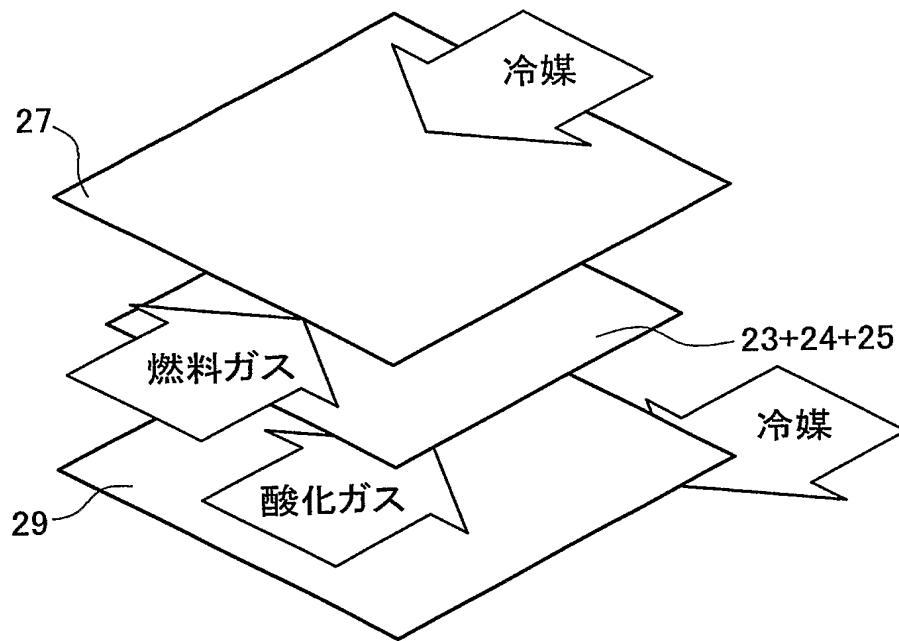
- 4 6 …第 1 排気路
- 4 7 …第 2 排気路
- 4 8, 4 9 …切り替え弁
- 5 0 …熱交換器
- 5 1 …酸化ガス供給路
- 5 2 …酸化ガス排出路
- 5 3 …酸化ガス循環路
- 5 4 …切り替え弁



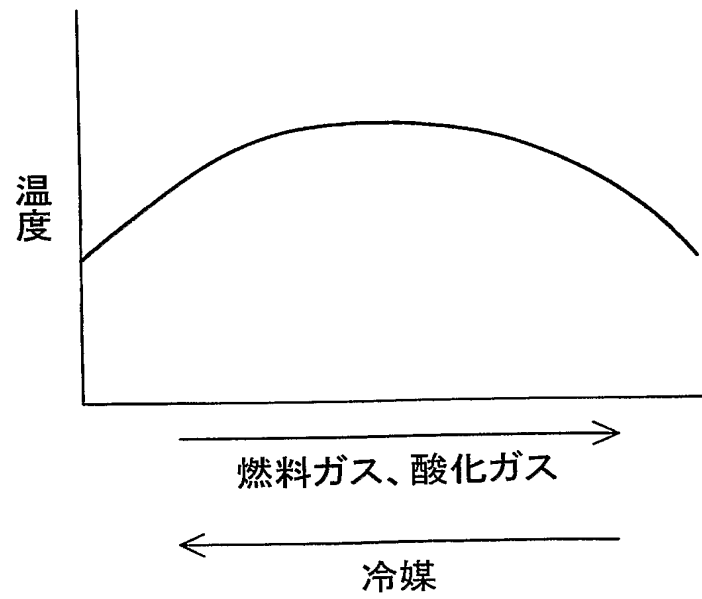
【書類名】 図面  
【図 1】



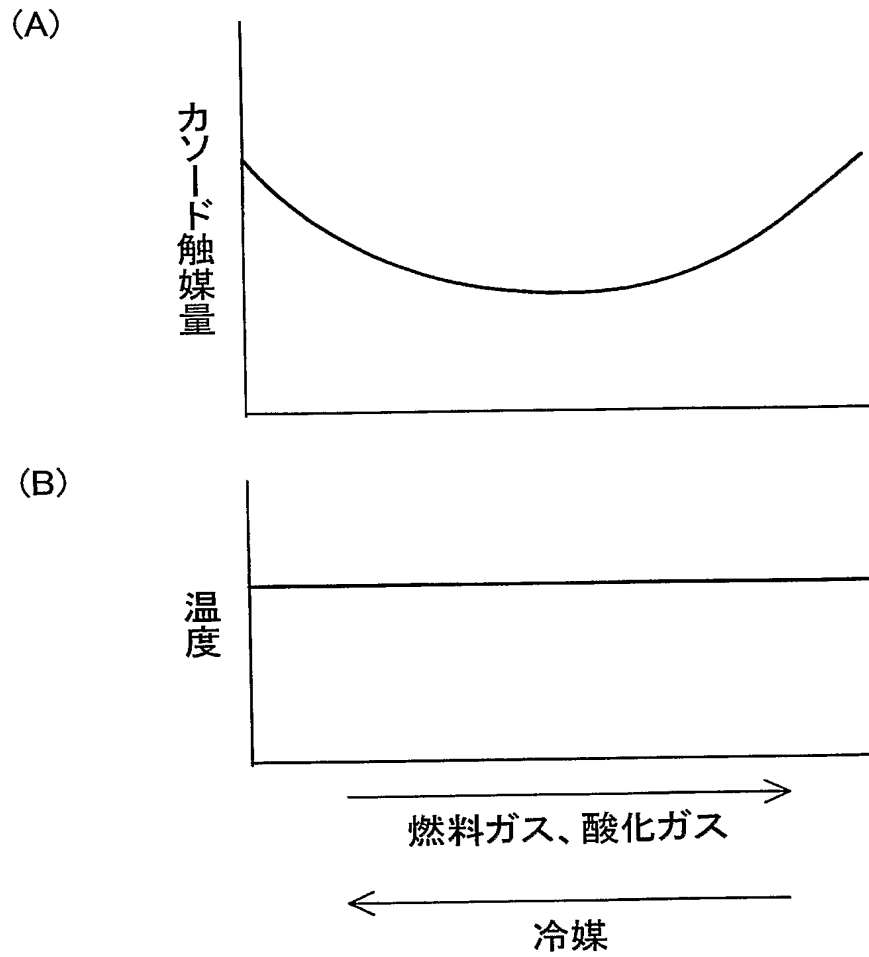
【図 2】



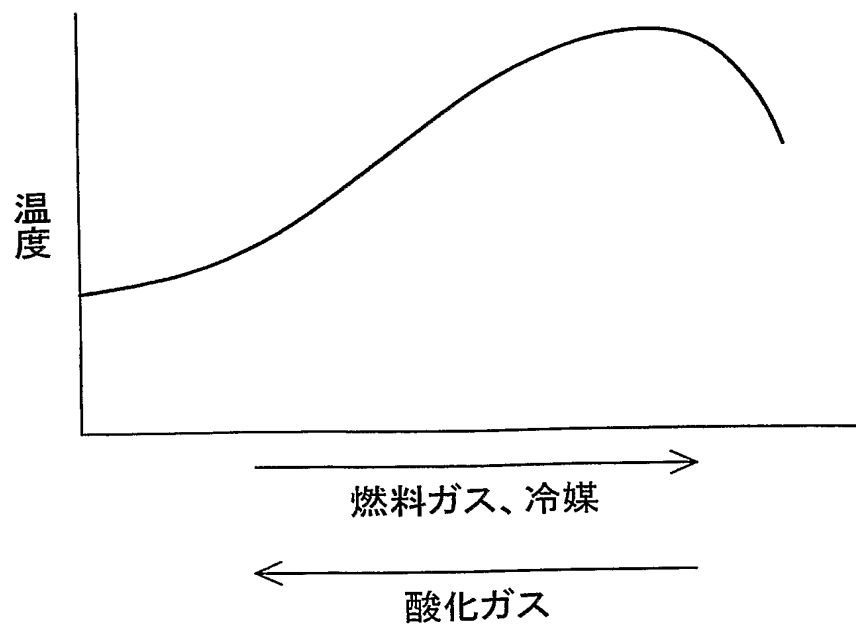
【図 3】



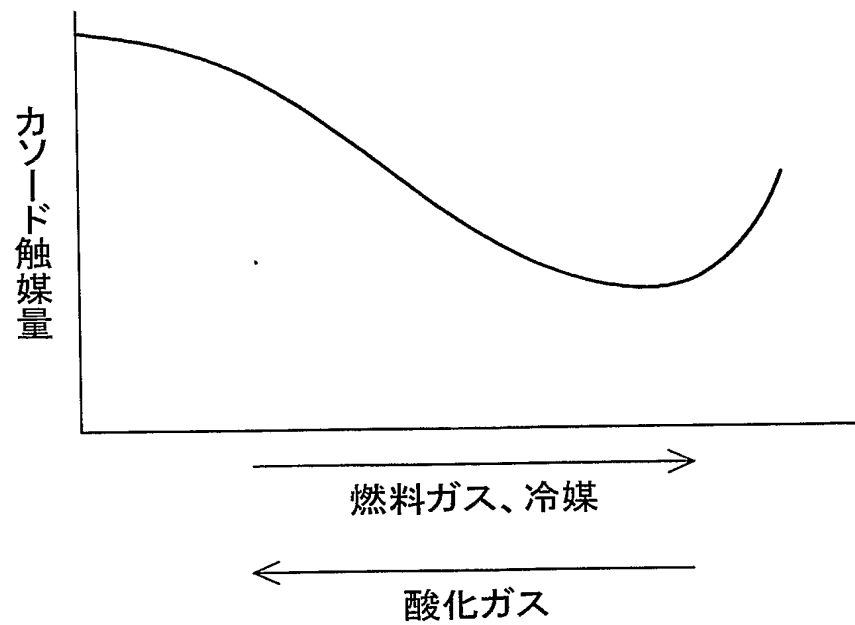
【図 4】



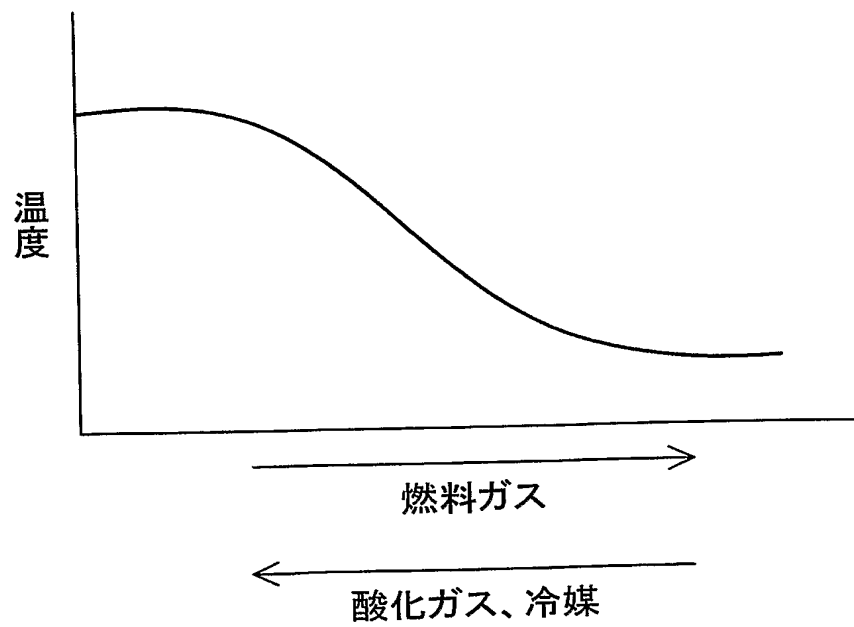
【図 5】



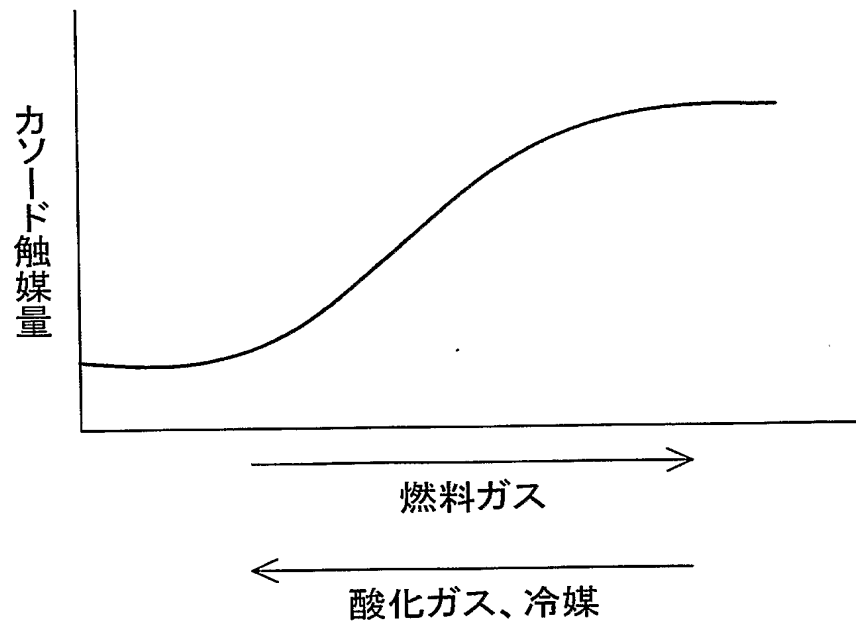
【図 6】



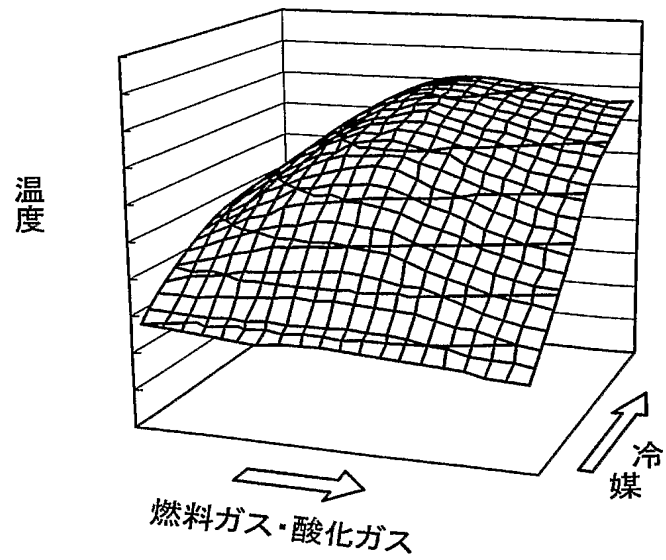
【図 7】



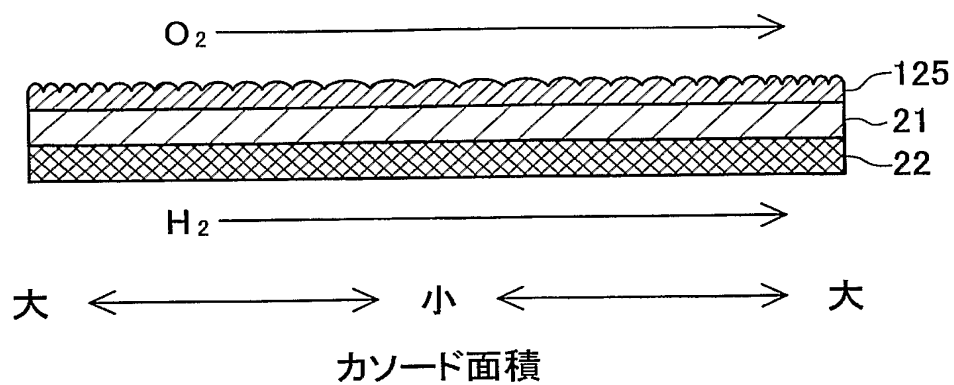
【図 8】



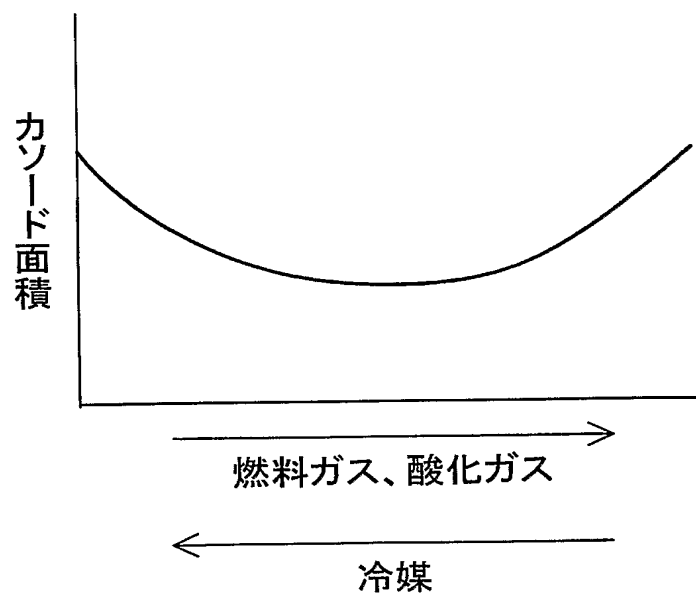
【図 9】



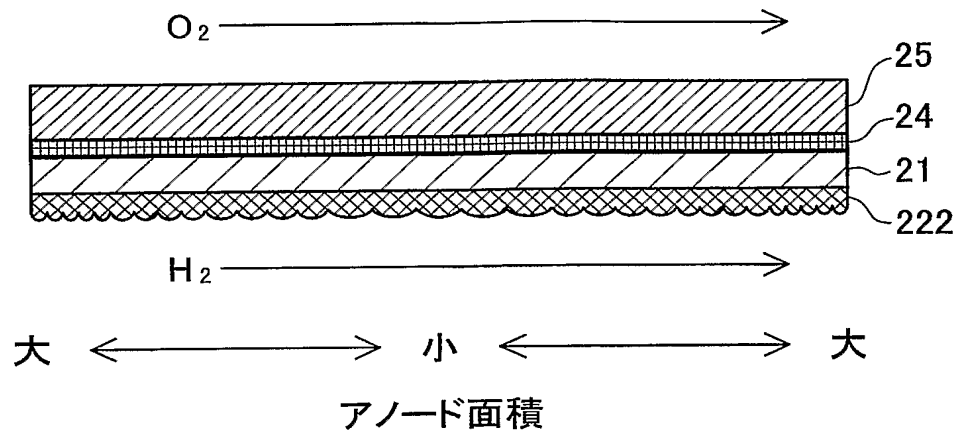
【図 10】



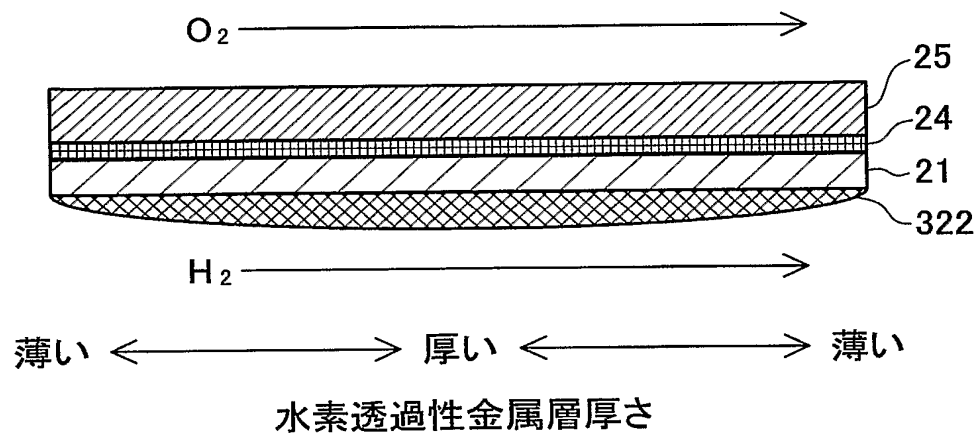
【図 11】



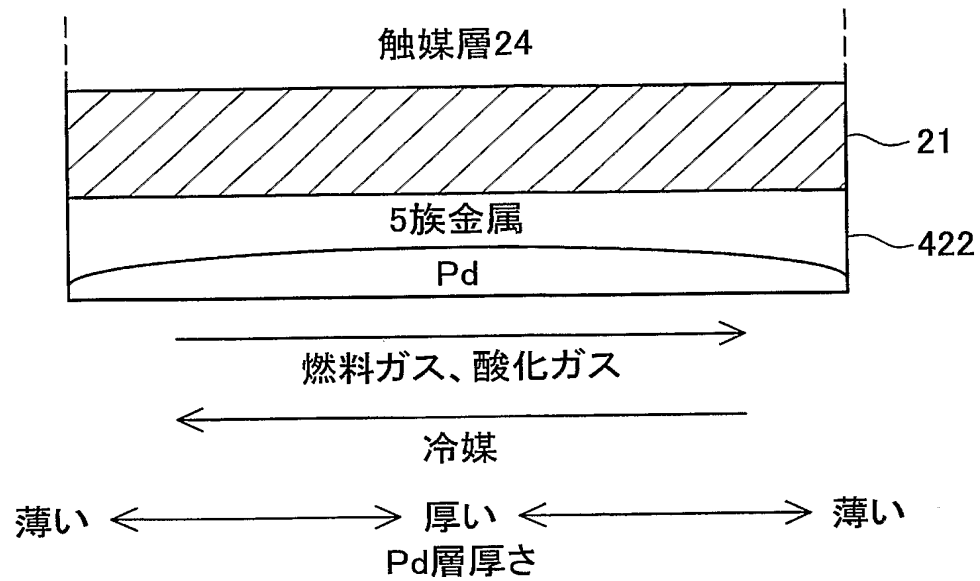
【図 12】



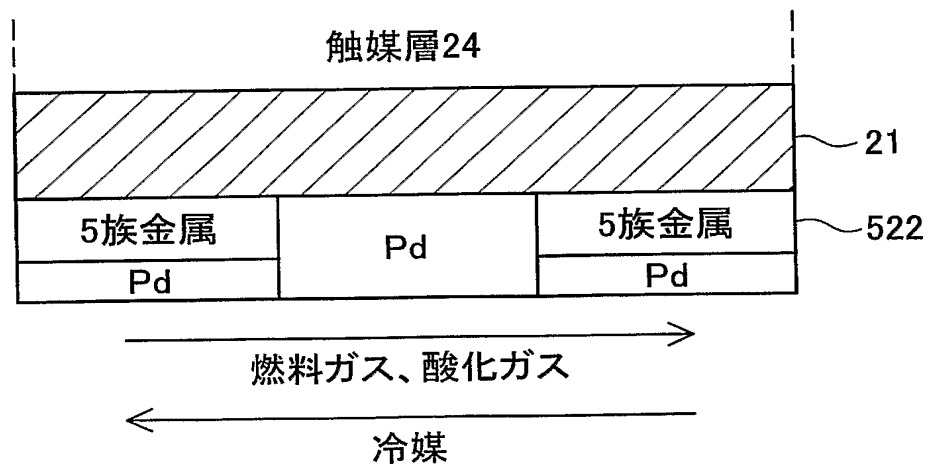
【図 13】



【図 14】

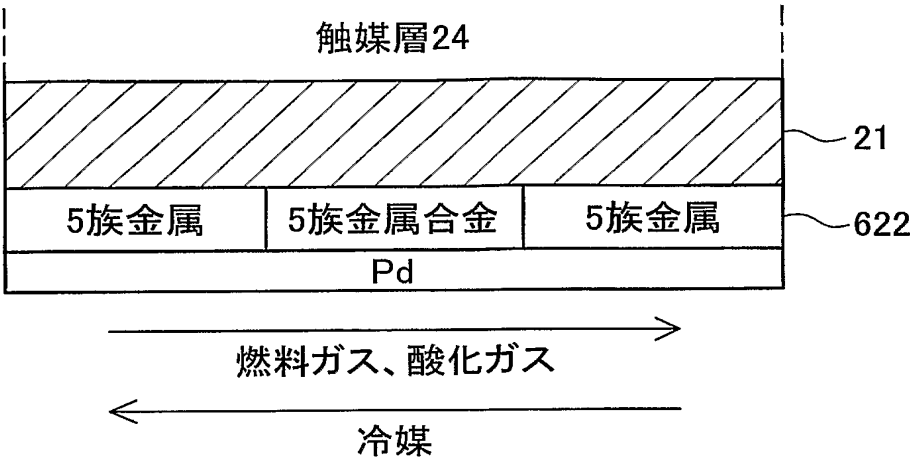


【図 15】

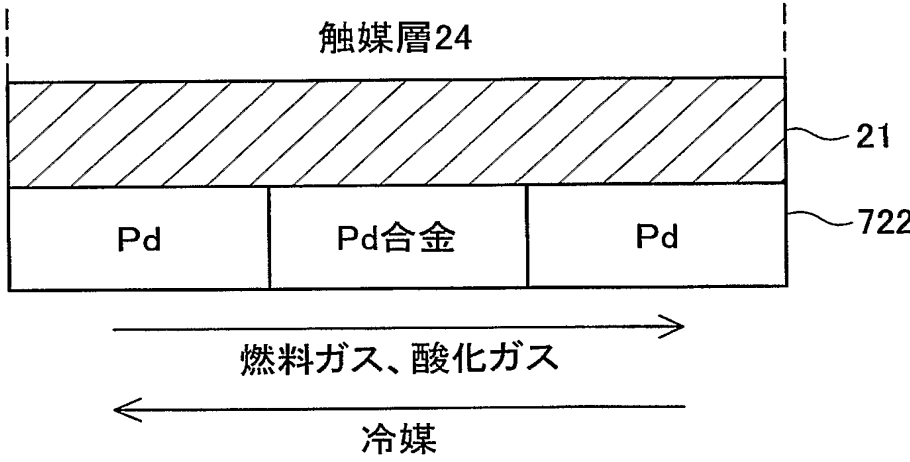




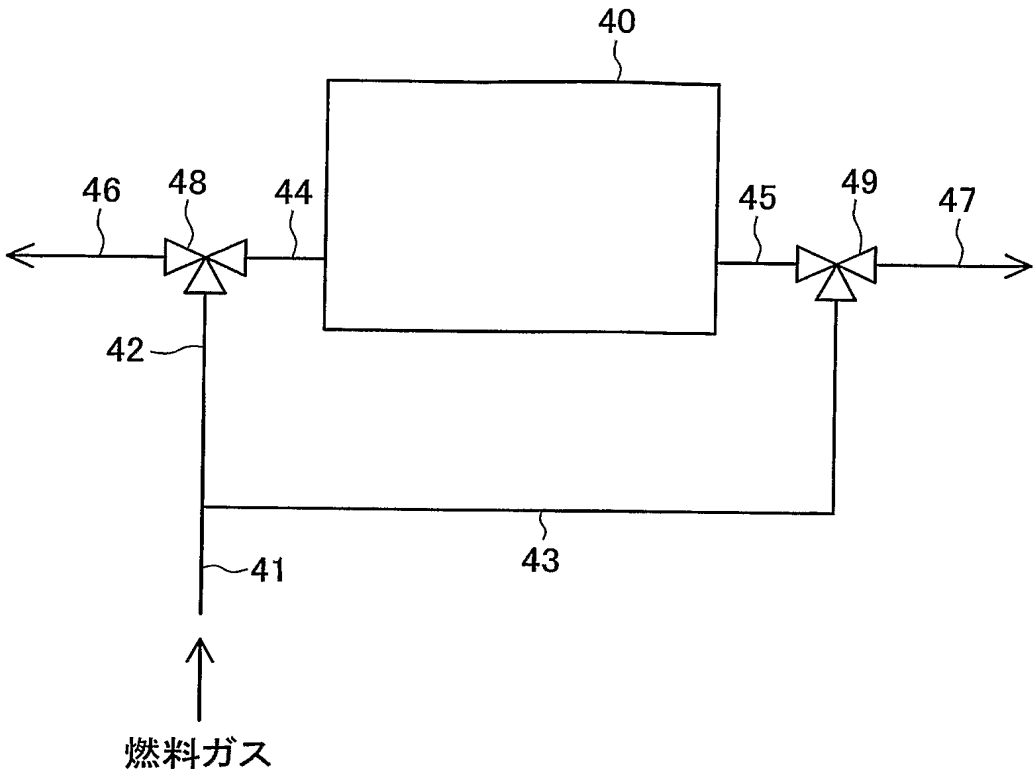
【図 1 6】



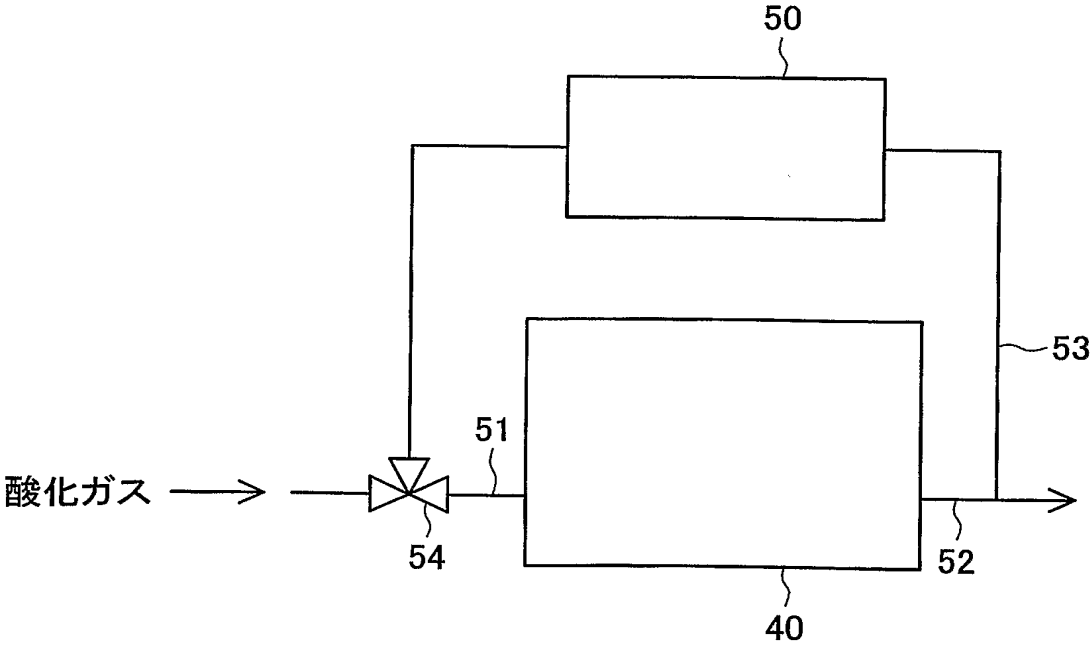
【図 1 7】



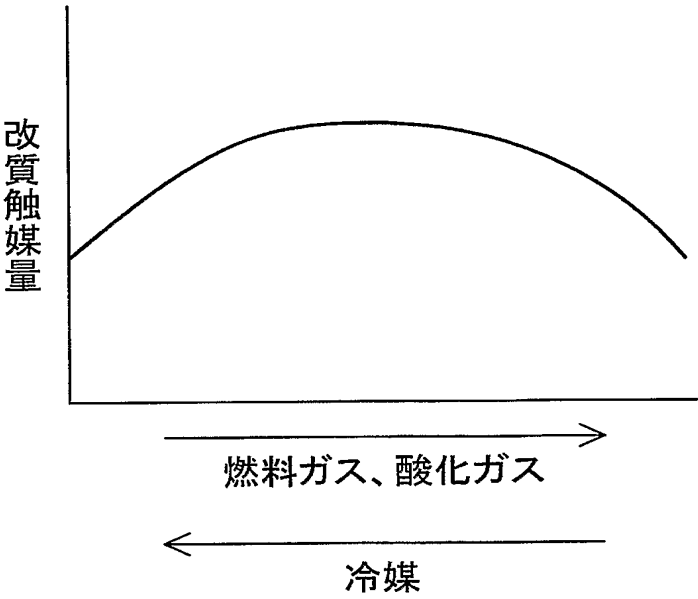
【図 18】



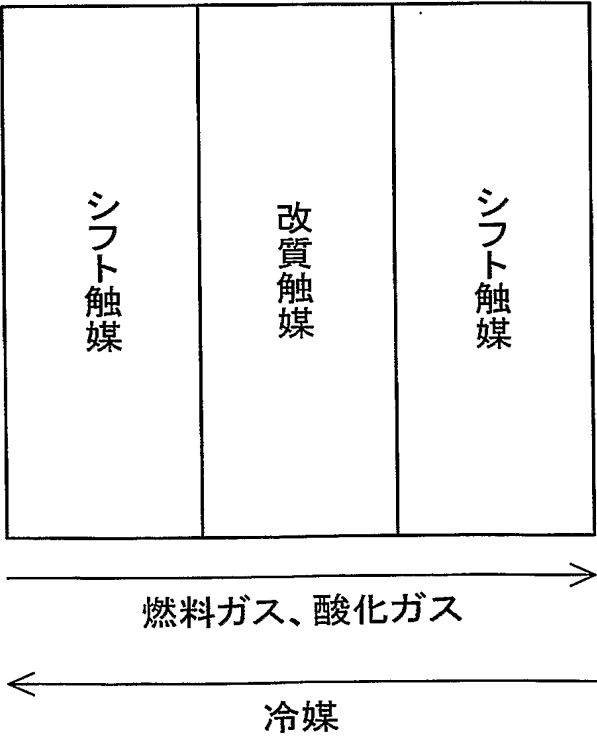
【図 19】



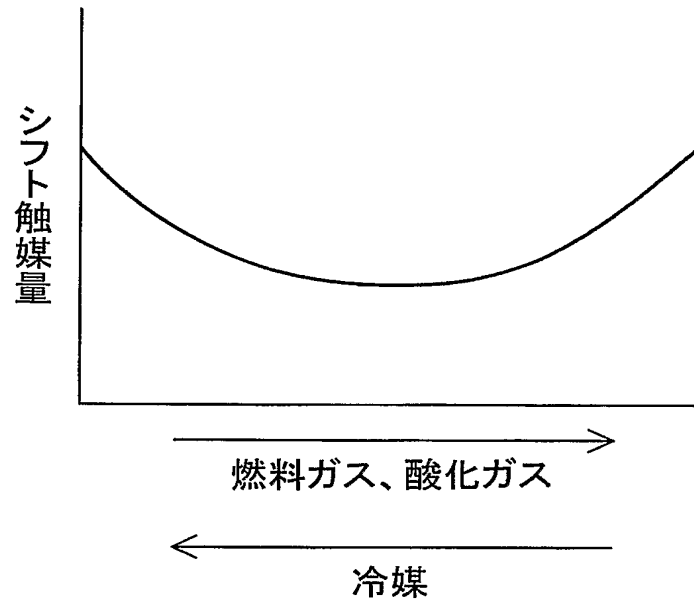
【図 2 0】



【図 2 1】



【図 2 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 水素透過性金属層を備える燃料電池内の不均一な温度分布に起因する燃料電池の耐久性低下などの性能低下を防止する。

【解決手段】 プロトン伝導性を有する電解質層の面上に配設されると共に水素透過性金属を含有する水素透過性金属層を備える燃料電池において、前記燃料電池に供給される流体の温度および流れ方向を含む前記燃料電池の運転条件により定まる前記燃料電池内の不均一な温度分布に応じて、燃料電池が備える触媒層が担持する触媒量を異ならせ、燃料電池内の温度分布状態を均一化する。

【選択図】 図 4

特願 2 0 0 3 - 4 2 7 0 8 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 3 2 0 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県豊田市トヨタ町 1 番地

氏 名

トヨタ自動車株式会社